

PCT

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)
[PCT18条、PCT規則43、44]

| | | |
|---------------------------|---|-------------------------|
| 出願人又は代理人 の書類記号 52064 | 今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。 | |
| 国際出願番号 PCT/JP00/05812 | 国際出願日 (日.月.年) 28.08.00 | 優先日 (日.月.年) 02.09.99 |
| 出願人(氏名又は名称) 第一工業製薬株式会社 | | |

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 _____ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☒ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl¹. H01M10/40

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl¹. H01M10/40

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案 1926-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2000年
 日本国登録実用新案公報 1994-2000年
 日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)
 dialogue file 352(WPI/J) MC=X16-A02A, X16-B01F1, X16-J?

C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
|-----------------|--|---------------------------------|
| EX | EP, 986122, A, (SONY Corp.), 15. Mar. 2000 (15. 03. 00) claims1-14, [0025]-[0039] (& JP, 2000-82330, A, 請求項1-14、段落0023-0037など) | 1, 4-16, 19-27 |
| EX | JP, 2000-173343, A, (日本カーリット株式会社), 23. 6月. 2000 (23. 06. 00) 請求項1-8、実施例、発明の用途(段落0104) など (ファミリーなし) | 1, 4-7, 12-16, 19, 20, 24-27 |

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

13. 11. 00

国際調査報告の発送日

21.11.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

植 前 充 司

4 X

9 4 4 5

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

| C (続き) . 関連すると認められる文献 | | |
|-----------------------|---|---|
| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
| E X | JP, 2000-90731, A、(株式会社フジクラ)、31. 3月. 2000 (31. 03. 00) 請求項 1, 2、段落0009-0017など (ファミリーなし) | 1, 4-7, 9-16, 19, 20, 22-27 |
| X A | JP, 11-134937, A、(大阪府)、21. 5月. 1999 (21. 05. 99) 請求項 1 - 13、段落0029など (ファミリーなし) | 1, 6, 7, 13-16, 19, 20, 24-27 2-5, 8-12, 17, 18, 21-23 |
| X A | JP, 60-165050, A、(三洋電機株式会社)、28. 8月. 1985 (28. 08. 85) 特許請求の範囲第 1 項など (ファミリーなし) | 1, 13-16, 25-27 2-12, 17-24 |

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2001年3月15日 (15.03.2001)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/18898 A1(51) 国際特許分類⁷: H01M 10/40

(21) 国際出願番号: PCT/JP00/05812

(22) 国際出願日: 2000年8月28日 (28.08.2000)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願平11/248890 1999年9月2日 (02.09.1999) JP
特願平11/248891 1999年9月2日 (02.09.1999) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 第一工業製薬株式会社 (DAI-ICHI KOGYO SEIYAKU CO., LTD.) [JP/JP]; 〒600-8873 京都府京都市下京区西七条東久保町55番地 Kyoto (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 西浦聖人 (NISHIURA, Masahito) [JP/JP]; 〒617-0827 京都府長岡京市竹の台2番地F2-405 Kyoto (JP). 河野通之 (KONO, Michiyuki) [JP/JP]; 〒572-0082 大阪府寝屋川市香里本通町14-1 Osaka (JP). 渡辺正義 (WATANABE, Masayoshi) [JP/JP]; 〒220-0032 神奈川県横浜市西区老松町30-3-401 Kanagawa (JP).

(74) 代理人: 弁理士 蔦田璋子, 外 (TSUTADA, Akiko et al.); 〒541-0048 大阪府大阪市中央区瓦町1丁目7番1号 第百生命大阪瓦町ビル8階 Osaka (JP).

(81) 指定国 (国内): CA, US.

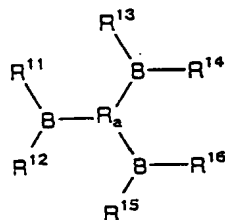
(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

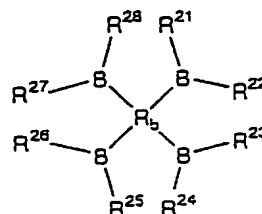
[続葉有]

(54) Title: POLYELECTROLYTE, NON-AQUEOUS ELECTROLYTE, AND ELECTRICAL DEVICE CONTAINING THE SAME

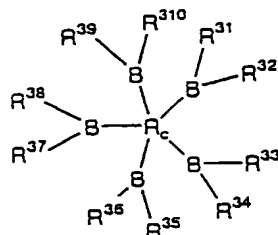
(54) 発明の名称: 高分子電解質、非水電解質及びこれを用いてなる電気デバイス



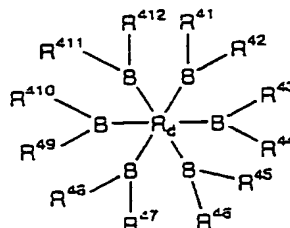
(1)



(2)



(3)



(4)

(57) Abstract: A polyelectrolyte or non-aqueous electrolyte which contains at least one member selected from the group consisting of compounds each having boron atoms in the structure, preferably compounds represented by general formulae (1) to (4), and which therefore has a heightened transport number with respect to charge carrier ions; and an electrical device, such as a battery, containing these. In the formulae, R¹¹, R¹², R¹³, R¹⁴, R¹⁵, R¹⁶, R²¹, R²², R²³, R²⁴, R²⁵, R²⁶, R²⁷, R²⁸, R³¹, R³², R³³, R³⁴, R³⁵, R³⁶, R³⁷, R³⁸, R³⁹, R⁴¹, R⁴², R⁴³, R⁴⁴, R⁴⁵, R⁴⁶, R⁴⁷, R⁴⁸, R⁴⁹, R⁴¹⁰, R⁴¹¹, and R⁴¹² each represents hydrogen, halogeno, or a monovalent group or is bonded to another to form a ring; and Ra, Rb, Rc, and Rd each represents a group comprising parts each bondable to the same or different boron atoms.

[続葉有]

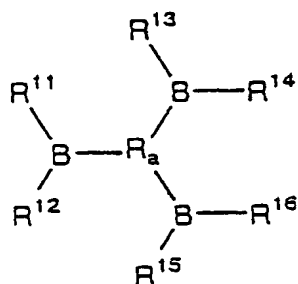


2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

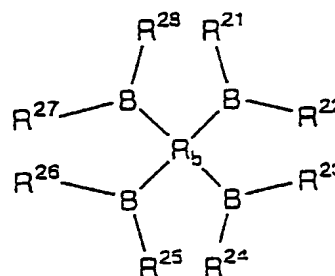
(57) 要約:

ホウ素原子を構造中に有する化合物、好ましくは次の一般式(1)～(4)で表される化合物からなる群より選ばれた1種又は2種以上が添加されたことにより、電荷キャリアイオンの輸率向上が可能な高分子電解質又は非水電解質、及びこれらを用いた電池等の電気デバイスを提供する。

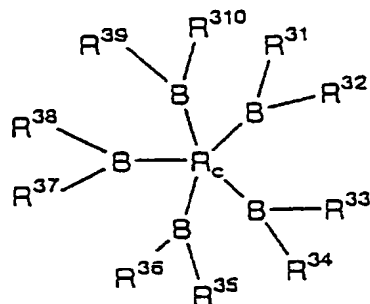
一般式(1)



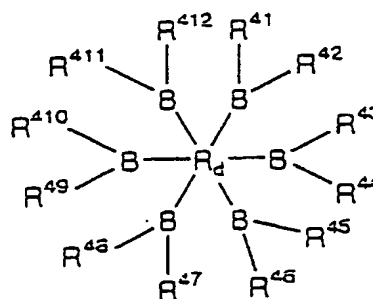
一般式(2)



一般式(3)



一般式(4)



式中、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、 R^{21} 、 R^{22} 、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{25} 、 R^{26} 、 R^{27} 、 R^{28} 、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 、 R^{34} 、 R^{35} 、 R^{36} 、 R^{37} 、 R^{38} 、 R^{39} 、 R^{310} 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{47} 、 R^{48} 、 R^{49} 、 R^{410} 、 R^{411} 、 R^{412} は、各々水素原子、ハロゲン原子、1価の基、又は互いに結合して環を形成している基を示す。 R_a 、 R_b 、 R_c 、 R_d は、同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な部位を含む基を示す。

明 細 書

高分子電解質、非水電解質及びこれを用いてなる電気デバイス

技術分野

本発明は、ホウ素原子を構造中に有する化合物を添加剤として用いることによって電荷キャリアイオンの輸率向上を可能にした高分子電解質、非水電解質及びこれを用いた電気デバイスに関するものである。

背景技術

高電圧・高容量の電池の開発に伴い、様々な系の高分子電解質や非水電解質が数多く提案されている。しかし、高分子電解質や非水電解質は、水系電解質と比較して、イオン伝導度が一桁以上低く、また、例えばポリエチレングリコールを用いた高分子電解質は、電荷キャリアイオンの移動及び輸率が低いといった欠点があり、種々の手法を用いて改善の試みが為されている。

一方、非水電解質を電池系に適用した場合、充放電効率やサイクル特性の低さが問題となっている。そこで、これらの改良を目的として、電解液の溶媒組成や支持塩の種類の検討や、また、非水電解質に添加剤を加えた系の検討がなされている。例えば、特開平 11 - 3728 号では、リチウムを可逆的に吸蔵放出可能な材料を含む正極と負極、リチウム塩を含む非水電解液、及びセパレーターから成る非水電解液二次電池において、電池内に少なくとも 1 種の有機ホウ素化合物を所定量含有させることが開示されている。

ところが、これら従来の技術においては、添加剤の有効濃度領域が狭い上、重量あたりの添加効果が小さいことが問題として挙げられる。

本発明は、上記に鑑みてなされたもので、電解質塩の解離度を高め、電荷キャリアイオンの輸率向上を可能にし、かつ用いられる添加剤の有効濃度領域が広

く、重量あたりの添加効果が大きい添加剤を含む高分子電解質及び非水電解質、並びにこれらを用いた電気デバイスを提供することを課題とする。

発明の開示

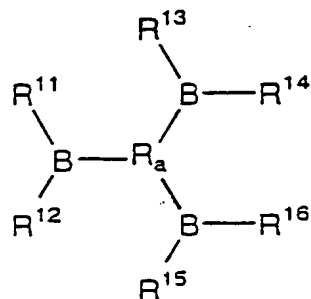
本発明者らは上記課題を解決すべく鋭意検討を重ねた結果、電解質塩の解離を促進し、かつ電荷キャリアイオンの対イオンを補足し動きにくくすることで電荷キャリアイオンの輸率をコントロールすることに想到し、ルイス酸である三価のホウ素原子を複数個構造中に有する化合物を添加剤として用いることが、上記課題を解決するための有効な手段であることを見出し、本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明の高分子電解質は、電解質塩及び該電解質塩と複合体を形成する高分子化合物からなる高分子電解質であって、ホウ素原子を構造中に有する化合物が1種又は2種以上添加されてなるものである。

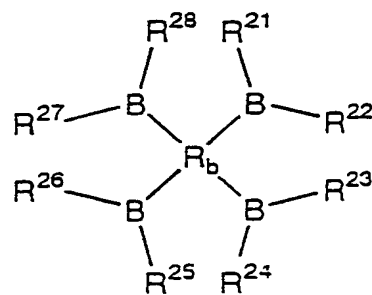
また、本発明の非水電解質は、電解質塩及び該電解質塩を溶解させる非水溶媒からなる非水電解質であって、ホウ素原子を構造中に有する化合物が1種又は2種以上添加されてなるものである。

上記ホウ素原子を構造中に有する化合物は、好ましくは次の一般式(1)～(4)で表される化合物からなる群より選ばれたものとする。

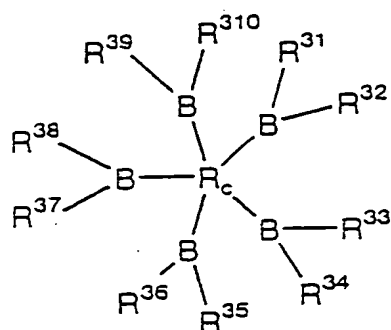
一般式(1)



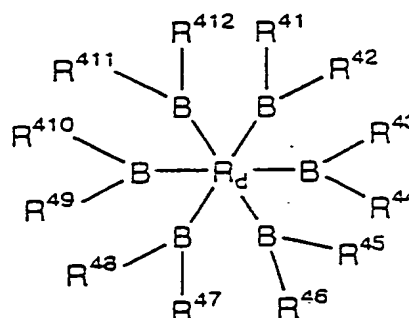
一般式(2)



一般式 (3)



一般式 (4)



式 (1) 中、R¹¹、R¹²、R¹³、R¹⁴、R¹⁵、R¹⁶、式 (2) 中、R²¹、R²²、R²³、R²⁴、R²⁵、R²⁶、R²⁷、R²⁸、式 (3) 中、R³¹、R³²、R³³、R³⁴、R³⁵、R³⁶、R³⁷、R³⁸、R³⁹、R³¹⁰、式 (4) 中、R⁴¹、R⁴²、R⁴³、R⁴⁴、R⁴⁵、R⁴⁶、R⁴⁷、R⁴⁸、R⁴⁹、R⁴¹⁰、R⁴¹¹、R⁴¹²は、それぞれ互いに同一であっても異なってもよく、各々水素原子、ハロゲン原子、又は 1 価の基を表し、あるいは、互いに結合して環を形成しているものとする。

式 (1) 中、Ra は少なくとも 3 つの同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な部位を含む基を示し、式 (2) 中、Rb は少なくとも 4 つの同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な部位を含む基を示し、式 (3) 中、Rc は少なくとも 5 つの同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な部位を含む基を示し、式 (4) 中、Rd は少なくとも 6 つの同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な部位を含む基を示す。

本発明の高分子電解質に用いられる高分子化合物は、例えば、ポリアルキレン、ポリエーテル、ポリエステル、ポリアミン、ポリイミド、ポリウレタン、ポリスルフィド、ポリフォスファゼン、ポリシロキサン、これらの誘導体、これらの共重合体、又はこれらの架橋体からなるものである。あるいは、ポリアルキレンオキシド、ポリフッ化ビニリデン、ポリヘキサフルオロプロピレン、ポリアクリロニトリル、ポリメタクリル酸メチル、これらの誘導体、これらの共重合体、又はこれらの架橋体からなるものである。

上記電解質塩としては、好ましくはリチウム塩を用いる。また、非水溶媒とし

ては、好ましくは非プロトン性溶媒を用いる。

本発明の電気デバイスは、上記のうちいずれかの高分子電解質又は非水電解質を用いてなるものである。例えば、電気デバイスが電池であれば、正極と負極とを、上記のうちいずれかの高分子電解質を介して接合するか、あるいは上記のうちいずれかの非水電解質とセパレータを介して接合することにより得られる。

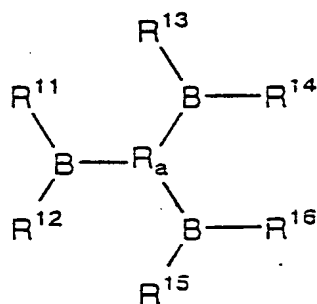
発明を実施するための最良の形態

本発明の好ましい形態を以下に挙げるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

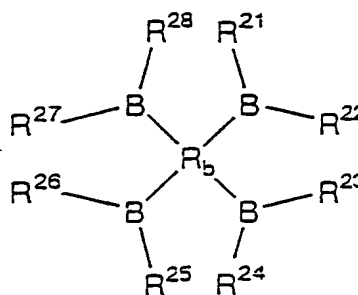
1. ホウ素原子含有化合物

本発明の高分子電解質又は非水電解質に添加されるホウ素原子を構造中に有する化合物としては、上記したように一般式(1)～(4)で表されるものが好適に用いられる。

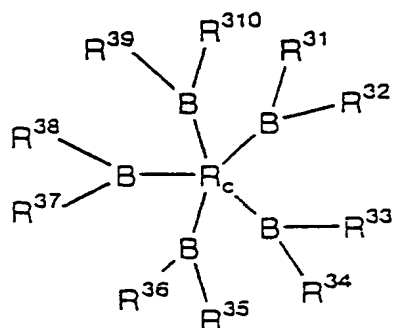
一般式(1)



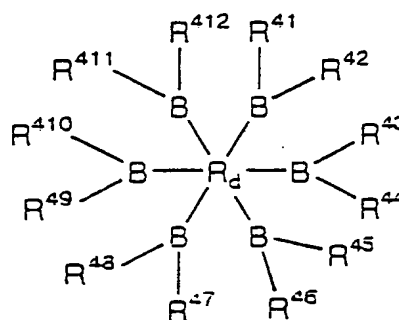
一般式(2)



一般式(3)



一般式(4)



式(1)中、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、式(2)中、 R^{21} 、 R^{22} 、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{25} 、 R^{26} 、 R^{27} 、 R^{28} 、式(3)中、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 、 R^{34} 、 R^{35} 、 R^{36} 、 R^{37} 、 R^{38} 、 R^{39} 、 R^{310} 、式(4)中、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{47} 、 R^{48} 、 R^{49} 、 R^{410} 、 R^{411} 、 R^{412} は、それぞれ互いに同一であっても異なっても良く、各々、水素原子、ハロゲン原子、又は1価の基を示す。

1価の基の例としては、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アルケニル基、アルキニル基、アラルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、ヒドロキシル基、ホルミル基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、アシルオキシ基、スルホニルオキシ基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、カルボンアミノ基、オキシスルホニルアミノ基、スルホンアミド基、オキシカルボニルアミノ基、ウレイド基、アシル基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、スルホニル基、スルフィニル基、オキシスルホニル基、スルファモイル基、カルボン酸基、スルホン酸基、ホスホン酸基、複素環基、 $-B(R^1)(R^2)$ 、 $-OB(R^1)(R^2)$ 又は $-OSi(R^1)(R^2)(R^3)$ が挙げられるが、中でも、アルキル基、アリール基、及びこれらのフッ素置換誘導体が好ましい。ここで、 R^1 、 R^2 及び R^3 は、各々水素原子、ハロゲン原子、又は1価の基を示し、1価の基の例としては、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アルケニル基、アルキニル基、アラルキル基、シクロアルキル基、シアノ基、ヒドロキシル基、ホルミル基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、アシルオキシ基、スルホニルオキシ基、アミノ基、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、カルボンアミノ基、オキシスルホニルアミノ基、スルホンアミド基、オキシカルボニルアミノ基、ウレイド基、アシル基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、スルホニル基、スルフィニル基、オキシスルホニル基、スルファモイル基、カルボン酸基、スルホン酸基、ホスホン酸基、複素環基、及びこれらの誘導体が挙げられる。

また、上記式(1)中、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、式(2)中、 R^2

1、 R^{22} 、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{25} 、 R^{26} 、 R^{27} 、 R^{28} 、式(3)中、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 、 R^{34} 、 R^{35} 、 R^{36} 、 R^{37} 、 R^{38} 、 R^{39} 、 R^{310} 、及び式(4)中、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{47} 、 R^{48} 、 R^{49} 、 R^{410} 、 R^{411} 、 R^{412} は、互いに結合して環を形成していてもよく、この環は置換基を有していても良い。また、各基は置換可能な基によって置換されても良い。

式(1)中、 R_a で示される、少なくとも3つの同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な部位を含む基の例としては、グリセリン、トリメチロールエタン、トリヒドロキシベンゼン、ジヒドロキシ安息香酸、ジアミノ安息香酸、トリブロモベンゼン等の残基が挙げられる。

式(2)中、 R_b で示される、少なくとも4つの同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な部位を含む基の例としては、ジグリセリン、ペンタエリトリール、テトラブロモベンゼン等の残基が挙げられる。

式(3)中、 R_c で示される、少なくとも5つの同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な部位を含む基の例としては、グルコース、モリン等の残基が挙げられる。

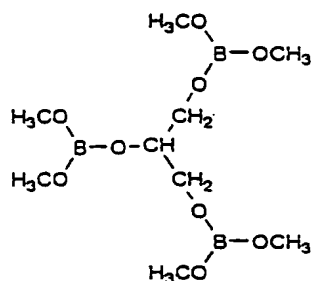
式(4)中、 R_d で示される、少なくとも6つの同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な部位を含む基の例としては、ガラクトリック酸、ミリセチン等の残基が挙げられる。

上記一般式(1)～(4)で示される化合物は、1種を単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

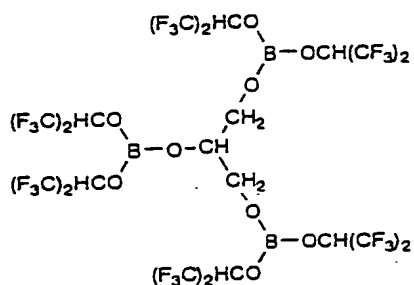
一般式(1)～(4)で表される化合物の具体例を以下に示す。

(以下余白)

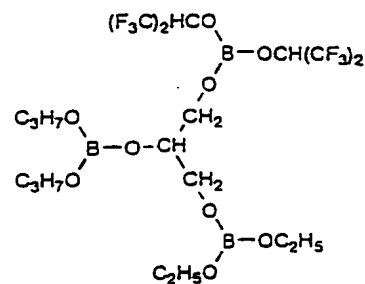
3Z-1



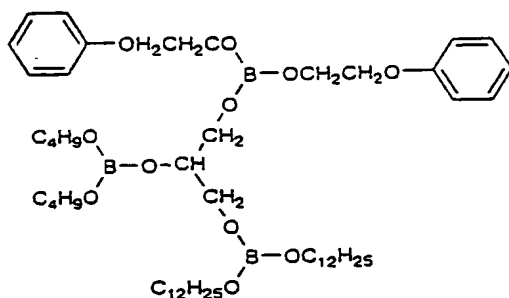
3Z-2



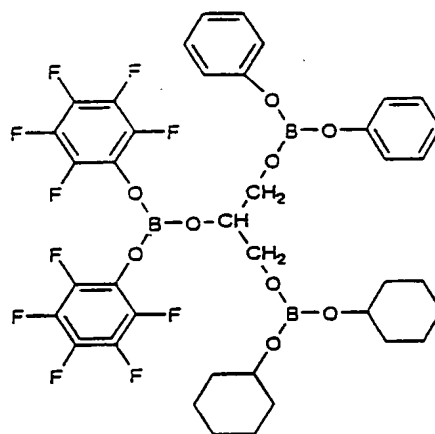
3Z-3



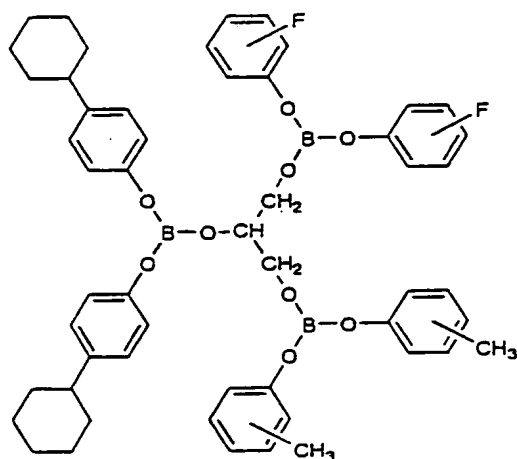
3Z-4



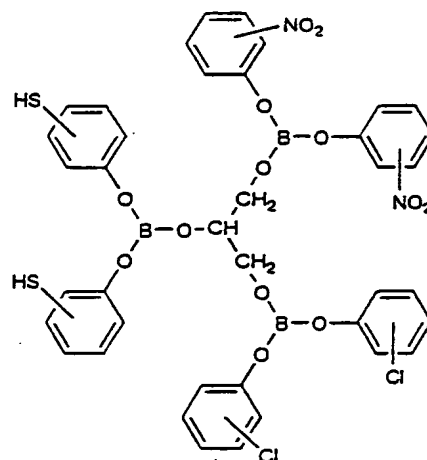
3Z-5



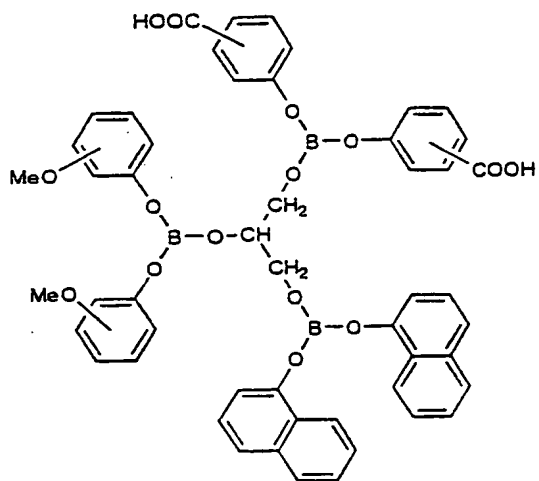
3Z-6



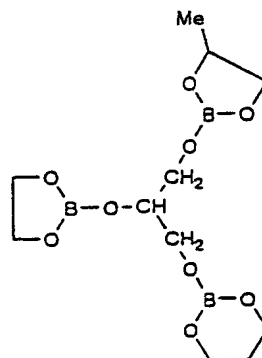
3Z-7



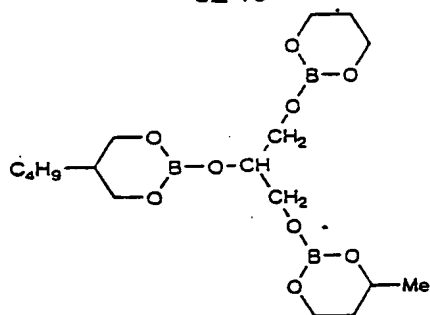
3Z-8



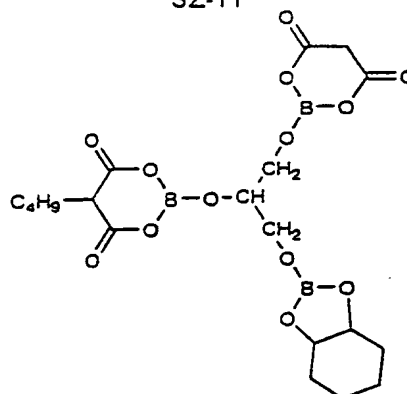
3Z-9



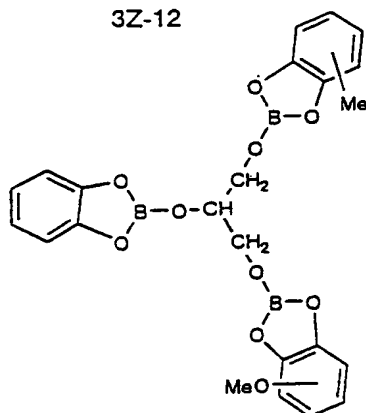
3Z-10



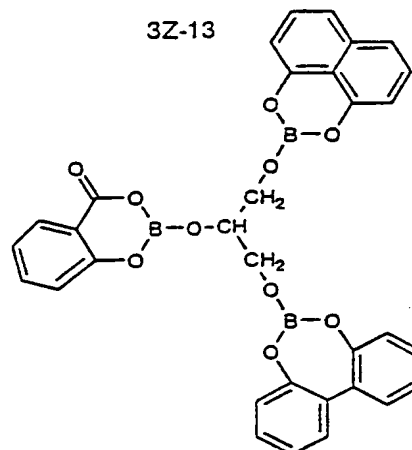
3Z-11

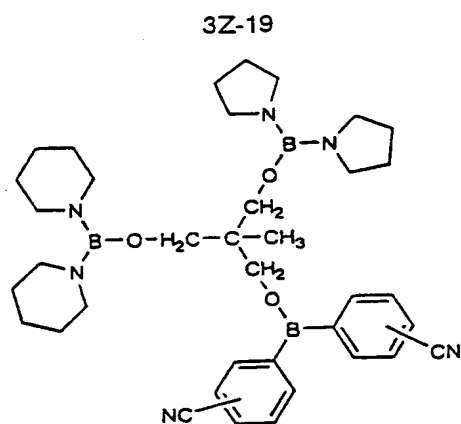
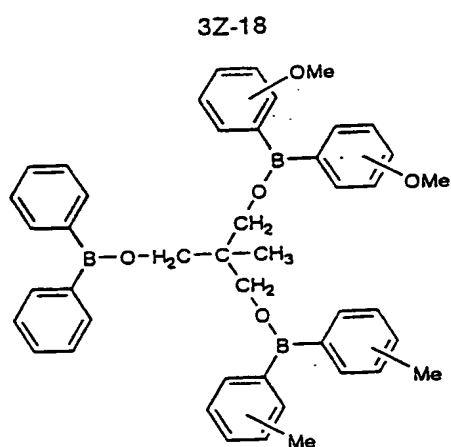
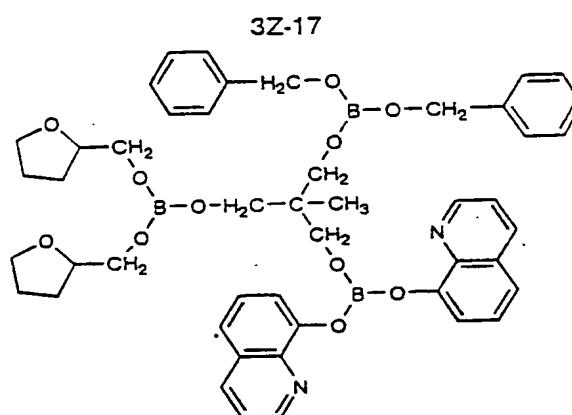
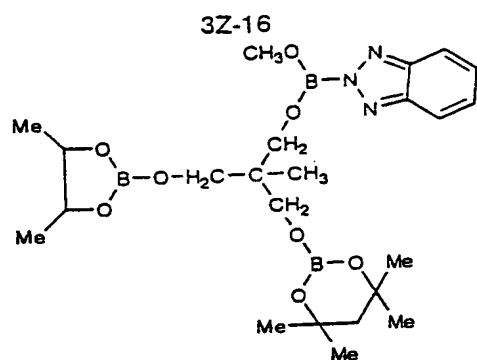
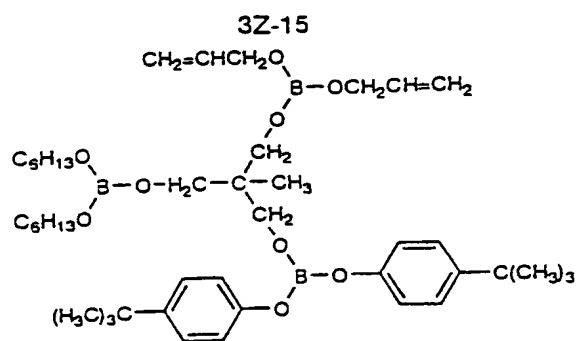
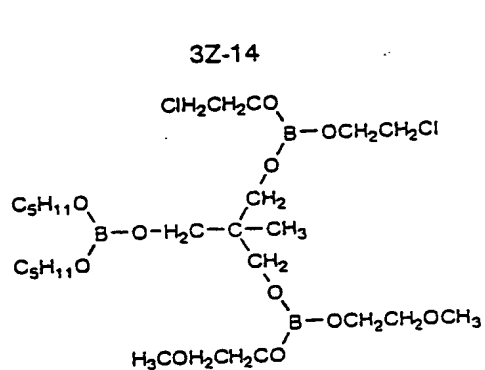


3Z-12

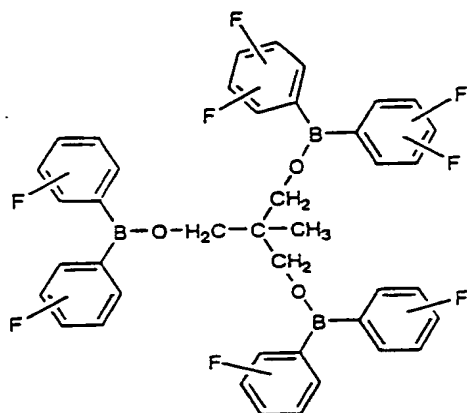


3Z-13

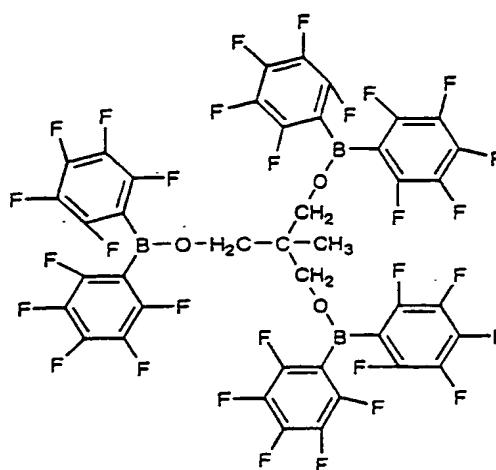




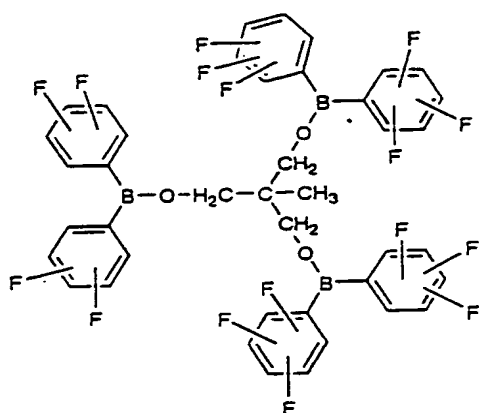
3Z-20



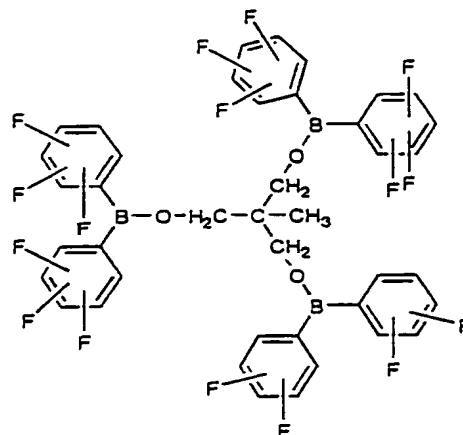
3Z-21



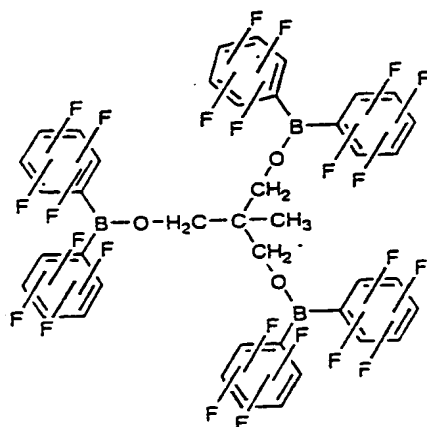
3Z-22



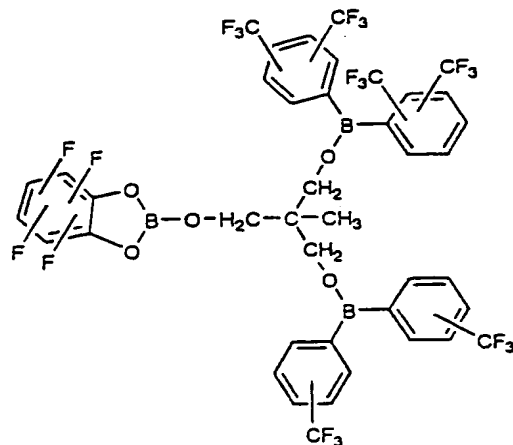
3Z-23

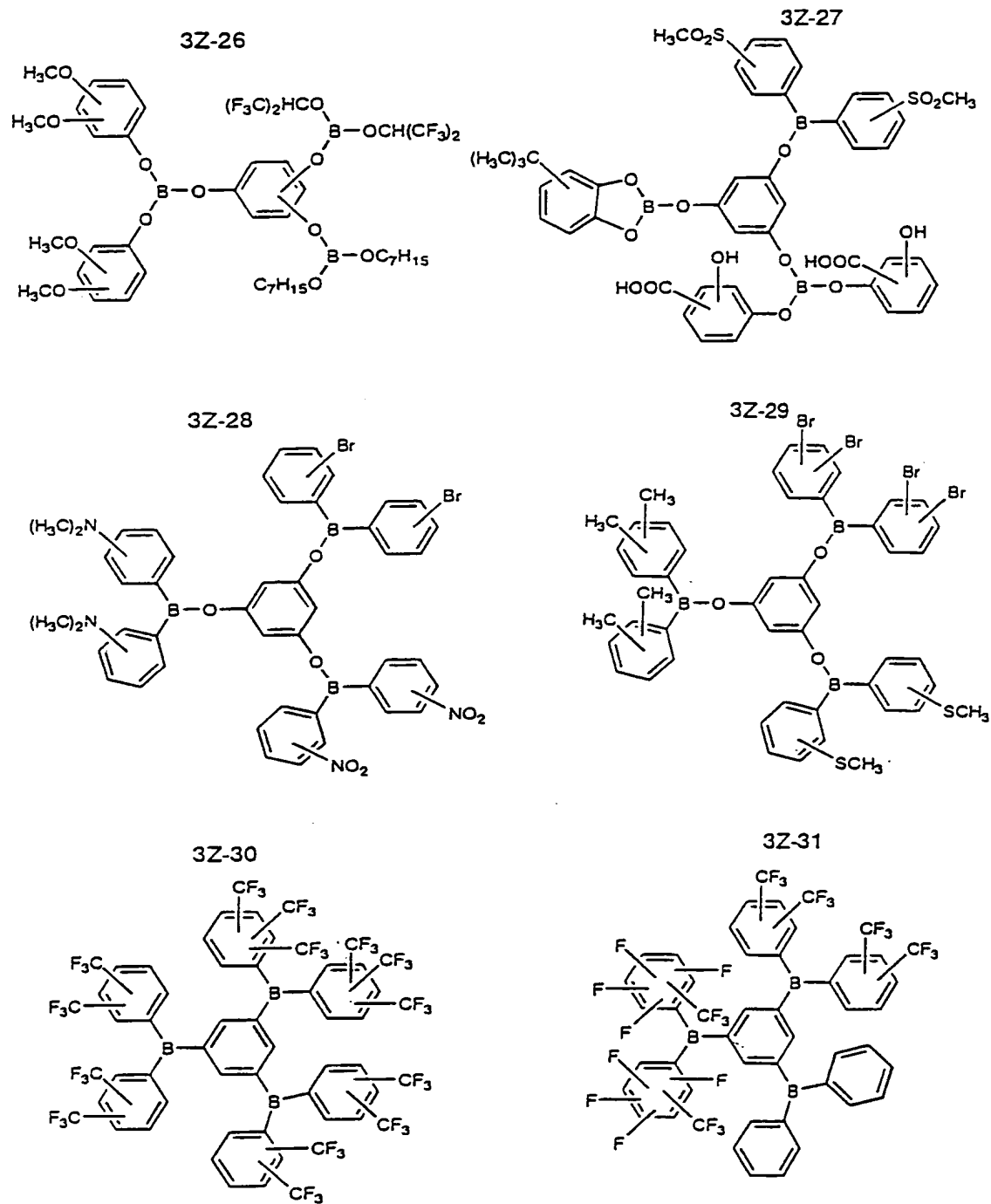


3Z-24

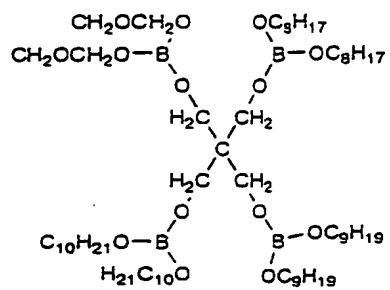


3Z-25

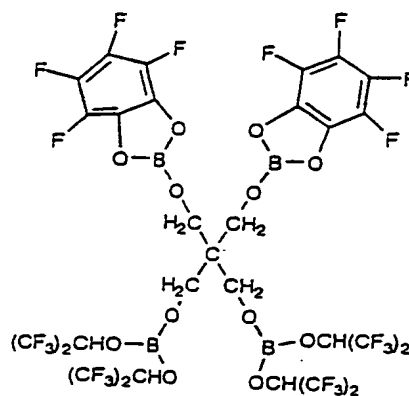




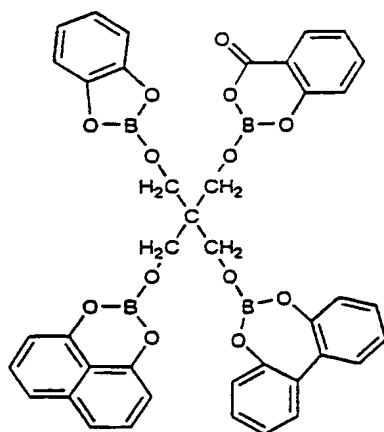
4Z-1



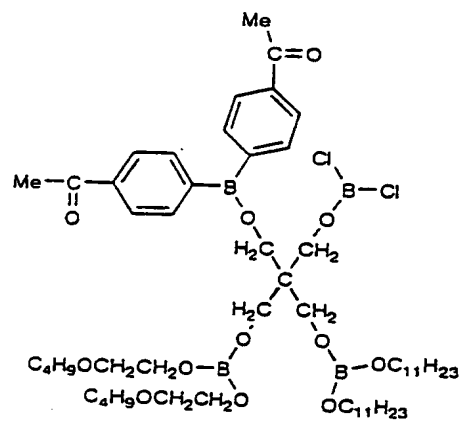
4Z-3



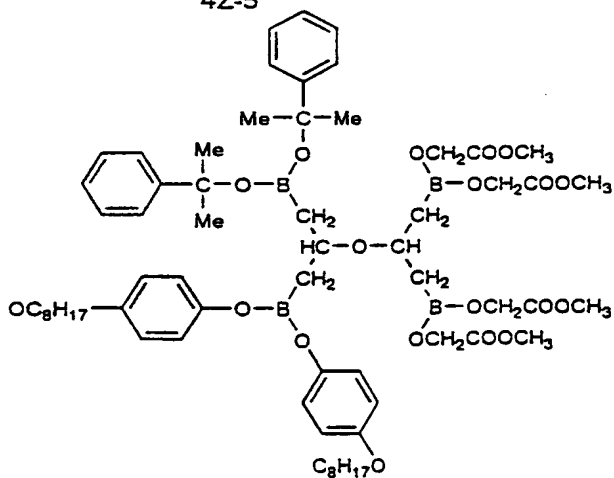
4Z-2



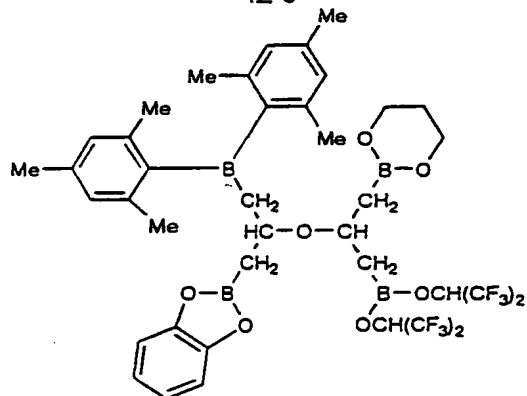
4Z-4



4Z-5



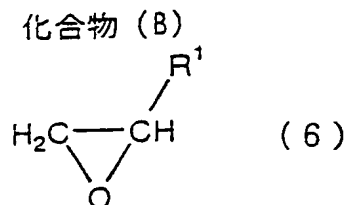
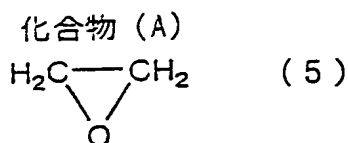
4Z-6



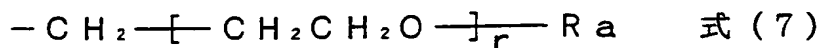
2. 高分子電解質

本発明の高分子電解質に用いられる高分子化合物の例としては、ポリアルキレン、ポリエーテル、ポリエステル、ポリアミン、ポリイミド、ポリウレタン、ポリスルフィド、ポリフォスファゼン、ポリシロキサン、ポリアルキレンオキシド、ポリフッ化ビニリデン、ポリヘキサフルオロプロピレン、ポリアクリロニトリル、ポリメタクリル酸メチル、それらの誘導体、それらの共重合体、及びそれらの架橋体が挙げられ、その1種又は2種以上が用いられる。

中でもアルキレンオキシド重合体、及び／又はその誘導体、及び／又はその架橋体からなる高分子化合物が好ましく、例えば次式(5)で表される化合物(A)及び／又は次式(6)で表される化合物(B)の重合体又は共重合体を用いることができる。



式(6)中、 R^1 は、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、又は次式(7)で表される基を示す。



式(7)中、 r は0又は1以上の整数を示し、 Ra は、メチル基、エチル基、プロピル基、又はブチル基を示す。

電解質塩は、金属塩が好ましく、リチウム塩であることがより好ましい。

その例としては、 LiBF_4 、 LiPF_6 、 LiClO_4 、 LiAsF_6 、 LiCF_3 、

SO_3 、 $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ 、 $\text{LiN}(\text{C}_2\text{F}_5\text{SO}_2)_2$ 、 $\text{LiC}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3$ 、 LiCl 、 LiF 、 LiBr 、 LiI 、およびこれらの誘導体等が挙げられ、これらリチウム塩は1種を単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

これら電解質塩の濃度は、通常 $0.01 \text{ mol/kg} \sim 10 \text{ mol/kg}$ の範囲とし、好ましくは $0.2 \text{ mol/kg} \sim 6 \text{ mol/kg}$ とする。

非水溶媒は非プロトン性溶媒であることが好ましく、その例としては、カーボネート類、ラクトン類、エーテル類、スルホラン類、およびジオキソラン類が挙げられる。これら非プロトン性溶媒は1種を単独で用いてもよく、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

上記高分子化合物と非水溶媒の混合比は、重量比で $1/99 \sim 99/1$ とし、好ましくは $5/95 \sim 95/5$ とし、より好ましくは $10/90 \sim 90/10$ とする。

また、ホウ素原子を構造中に有する化合物と電解質塩とのモル比は、好ましくは $0.1 : 100 \sim 300 : 100$ とし、より好ましくは $1 : 100 \sim 200 : 100$ とし、さらに好ましくは $50 : 100 \sim 100 : 100$ とする。

3. 非水電解質

本発明の非水電解質に用いられる電解質塩及び非水溶媒の例としては、上記高分子電解質について挙げたのと同じものが挙げられる。また、電解質塩の濃度、及びホウ素原子含有化合物と電解質塩とのモル比も、上記高分子電解質について挙げた範囲にすればよい。

4. 電気デバイス

上記した本発明の高分子電解質は、種々の電気デバイスに適用可能であり、その例としては、電池、キャパシタ等が挙げられる。その中で代表的なものは電池であり、正極と負極とを上記のいずれかの高分子電解質を介して接合するか、あるいは、上記のいずれかの非水電解質とセパレータを介して接合することにより

得られる。

ここで正極には、リチウムイオンを吸蔵及び放出することが可能な複合金属酸化物が用いられ、その例としてはコバルト酸リチウム、ニッケル酸リチウム、マンガン酸リチウム、五酸化バナジウム等が挙げられる。

また、負極には、リチウム金属、リチウム合金、もしくはリチウムイオンを可逆的に吸蔵及び放出することが可能な物質が用いられ、そのような物質の例としてはカーボン等が挙げられる。

さらに、セパレータにはリチウムイオンが透過可能な、多孔性フィルム、不織布、織布等が用いられ、その素材の例としては、例えばポリエチレン、ポリプロピレン等のオレフィン系ポリマー、フッ素系ポリマー、セルロース系ポリマー、ガラス繊維等が挙げられる。

5. 実施例

以下、実施例により本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例によって限定されるものではない。

(1) 高分子電解質についての実施例・比較例

[モノマーの製造]

・モノマーA

出発物質エチレングリコールモノブチルエーテル 1mol に水酸化カリウム 0.01mol を加え攪拌しながら窒素置換を行った後、真空ポンプを用いて系内を減圧にした。次いで 120 °C に昇温し、モノマーとしてエチレンオキサイド 1mol を用いて反応させた。反応終了後、系内の温度が室温になるまで冷却し、ナトリウムメチラート 1.1mol のメタノール溶液を添加し、減圧しながら 50 °C までゆっくり昇温した。メタノールを完全に除去した後、エピクロロヒドリン 1.2mol を加え、4 時間反応させた。反応終了後、吸着処理を行い、減圧脱水後濾過することにより目的物を得た。

・モノマーB

出発物質としてエチレングリコールモノメチルエーテルを用い、モノマーとしてエチレンオキサイド 9mol を用いた以外はモノマーAと同様にして目的物を得た。

・モノマーC

出発物質としてエチレングリコールモノプロピルエーテルを用い、モノマーとしてエチレンオキサイド 2mol を用いた以外はモノマーAと同様にして目的物を得た。

・モノマーD

出発物質としてエチレングリコールモノエチルエーテルを用い、モノマーとしてエチレンオキサイド 49mol を用いた以外はモノマーAと同様にして目的物を得た。

・モノマーE

出発物質としてエチレングリコールモノメチルエーテルを用い、モノマーとしてエチレンオキサイド 1mol を用いた以外はモノマーAと同様にして目的物を得た。

[高分子化合物前駆体B-1～B-10の製造]

・高分子化合物前駆体B-1

出発物質エチレングリコール 0.5mol に水酸化カリウム 0.01mol を加え、攪拌しながら窒素置換し、真空ポンプを用いて系内を減圧にした。次いで、120 °Cに昇温し、モノマーとしてエチレンオキサイド 38000mol を用いて反応させた。反応終了後、系内の温度が室温になるまで冷却し、ナトリウムメチラート 1.1mol のメタノール溶液を添加し、減圧しながら 50 °Cまでゆっくり昇温した。メタノールを完全に除去し、放冷後、トルエン 1kg を添加し、アクリル酸クロライド 1mol を加えて4時間反応させた。酸・アルカリ吸着処理を行った後濾過し、減圧下トルエンを除去することで目的物を得た。

・高分子化合物前駆体B-2

出発物質としてグリセリン 0.33mol を用い、プロピレンオキサイド 28000mol をモノマーとして用い、アクリル酸クロライドの代わりにメタクリル酸クロライドを用いた以外は高分子化合物前駆体 B-1 と同様にして目的物を得た。

・高分子化合物前駆体 B-3

出発物質としてジグリセリン 0.25mol を用い、エチレンオキサイド 150mol と 1,2-エポキシヘキサン 600mol をモノマーとして用い、アクリル酸クロライドの代わりに塩化アリルを用いた以外は高分子化合物前駆体 B-1 と同様にして目的物を得た。

・高分子化合物前駆体 B-4

出発物質としてエチレングリコール 0.5mol を用い、エチレンオキサイド 2mol とブチレンオキサイド 1mol をモノマーとして用い、アクリル酸クロライドの代わりに塩化ビニルを用いた以外は高分子化合物前駆体 B-1 と同様にして目的物を得た。

・高分子化合物前駆体 B-5

出発物質としてグリセリン 0.33mol を用い、エチレンオキサイド 150mol と 1,2-エポキシペンタン 29mol をモノマーとして用いた以外は高分子化合物前駆体 B-1 と同様にして目的物を得た。

・高分子化合物前駆体 B-6

モノマー A 600mol をモノマーとして用いた以外は高分子化合物前駆体 B-1 と同様にして目的物を得た。

・高分子化合物前駆体 B-7

エチレンオキサイド 50mol とモノマー B 15mol をモノマーとして用いた以外は高分子化合物前駆体 B-2 と同様にして目的物を得た。

・高分子化合物前駆体 B-8

エチレンオキサイド 1mol とモノマー C 1mol をモノマーとして用いた以外は高分子化合物前駆体 B-3 と同様にして目的物を得た。

- ・ 高分子化合物前駆体 B-9

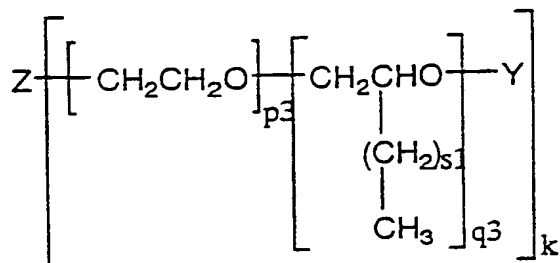
エチレンオキサイド 1600mol とモノマー D 400mol をモノマーとして用いた以外は高分子化合物前駆体 B-4 と同様にして目的物を得た。

- ・ 高分子化合物前駆体 B-10

エチレンオキサイド 126mol とモノマー E 24mol をモノマーとして用いた以外は高分子化合物前駆体 B-5 と同様にして目的物を得た。

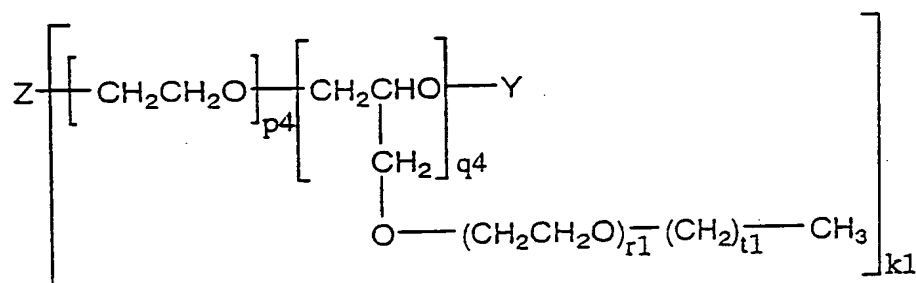
上記製造例により得られた高分子化合物前駆体 B-1 ～ B-10 の構造は、次の表及び化学式に示す通りである。

(以下余白)



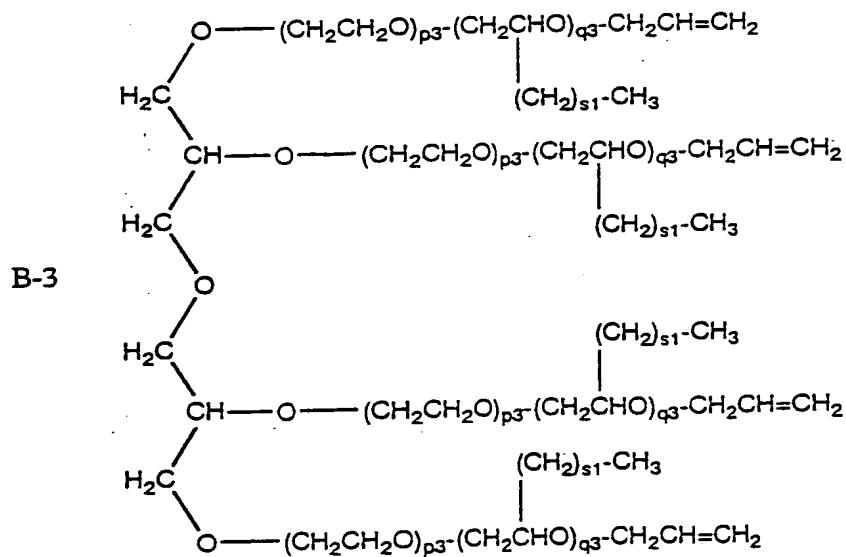
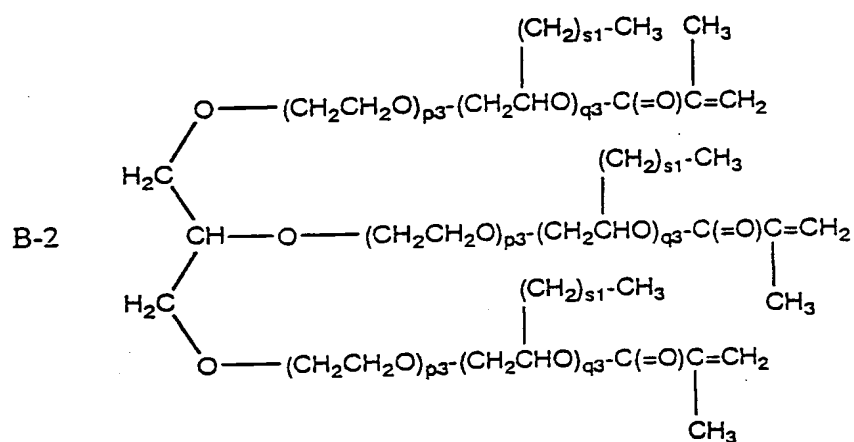
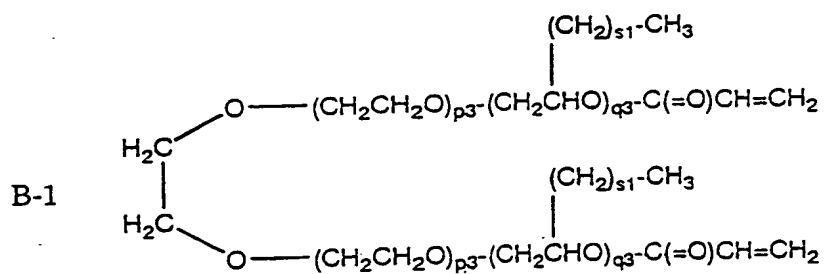
Zは活性水素残基

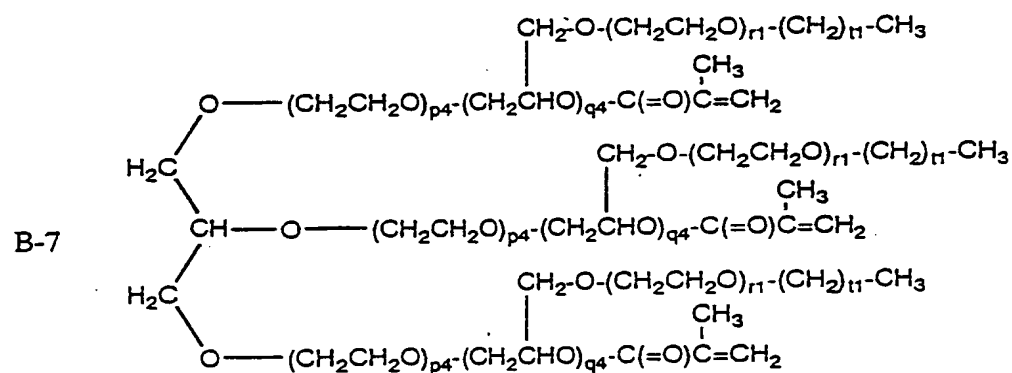
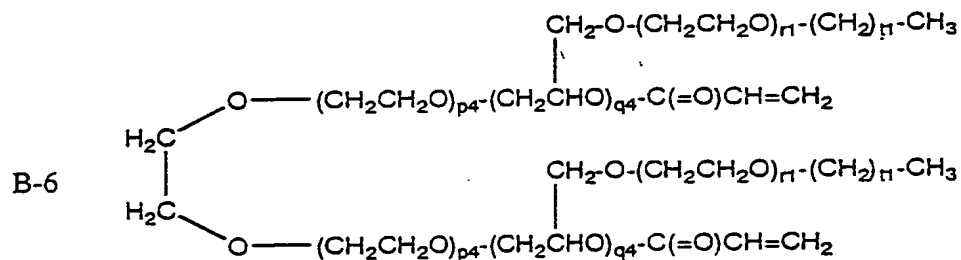
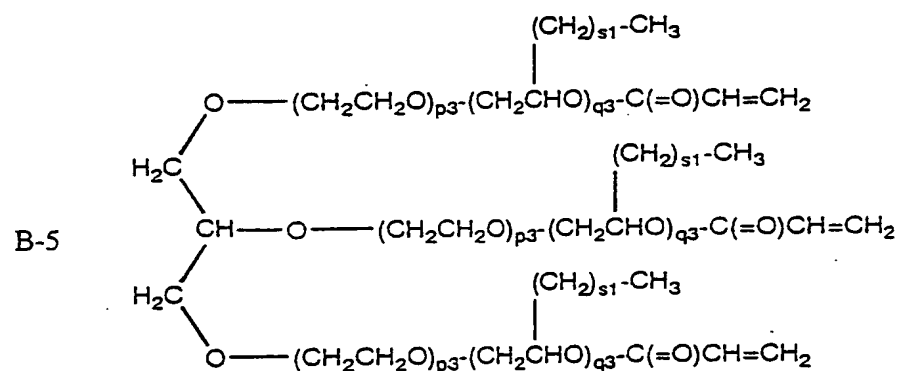
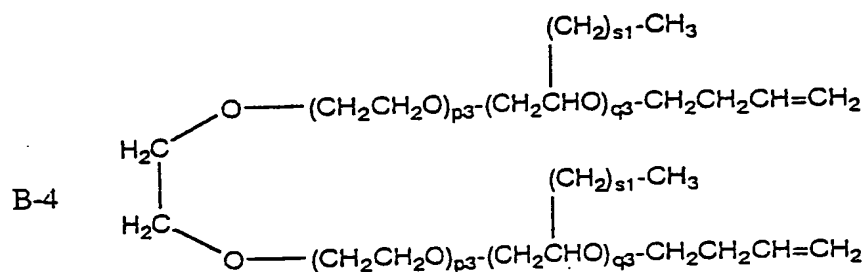
| 化合物 | p3 | q3 | s1 | Y | k |
|-----|-------|-------|----|----------|---|
| B-1 | 38000 | 0 | 0 | アクリロイル基 | 2 |
| B-2 | 0 | 28000 | 1 | メタクリロイル基 | 3 |
| B-3 | 150 | 600 | 3 | アリル基 | 4 |
| B-4 | 2 | 1 | 1 | ビニル基 | 2 |
| B-5 | 150 | 29 | 0 | アクリロイル基 | 3 |

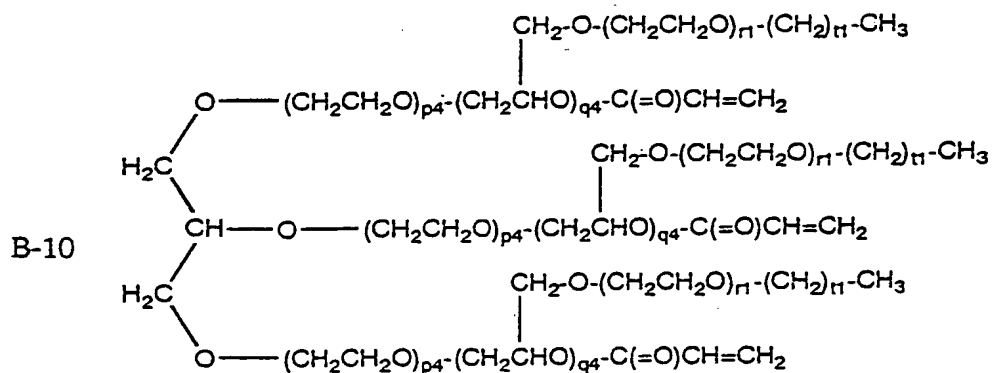
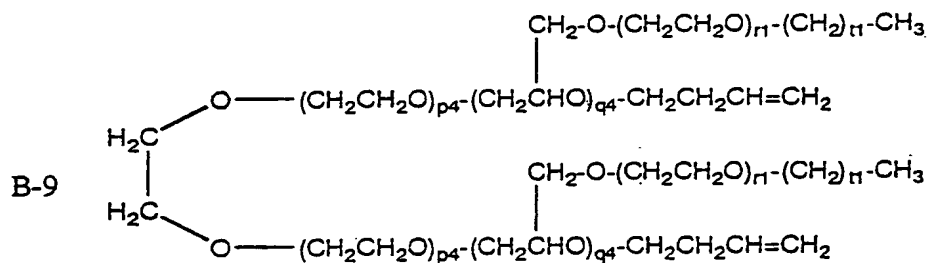
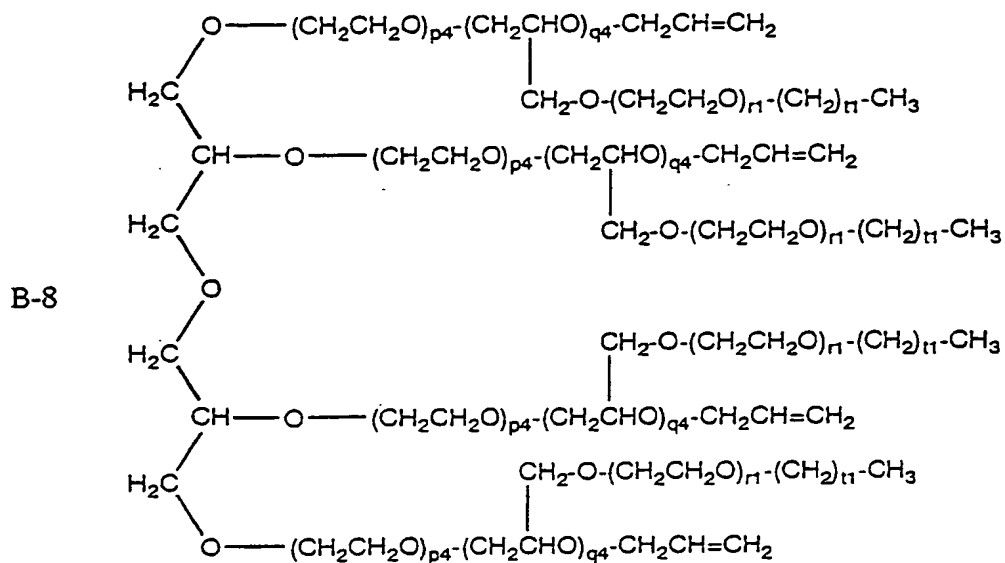


Zは活性水素残基

| 化合物 | p4 | q4 | r1 | t1 | Y | k1 |
|------|------|-----|----|----|----------|----|
| B-6 | 0 | 600 | 2 | 3 | アクリロイル基 | 2 |
| B-7 | 50 | 15 | 10 | 0 | メタクリロイル基 | 3 |
| B-8 | 1 | 1 | 3 | 2 | アリル基 | 4 |
| B-9 | 1600 | 400 | 50 | 1 | ビニル基 | 2 |
| B-10 | 126 | 24 | 2 | 0 | アクリロイル基 | 3 |







[高分子電解質の製造]

・実施例 1

高分子化合物前駆体 B-1 1g に、上記式 3Z-3 で示される添加物 1mol/kg、 LiBF_4 1mol/kg、 γ -ブチロラクトン 1.2g、光重合開始剤を加え、40 °Cで溶解させ、ガラス板間に流し込んだ後、アルゴン雰囲気下紫外線照射することにより、厚さ 500 μm の高分子電解質を得た。

・実施例 2 ～ 12

高分子化合物前駆体、添加物、塩、非プロトン性溶媒の種類及び量として次表 1 にそれぞれ示したものをを用いた以外は実施例 1 と同様にして高分子電解質を得た。

・比較例 1 ～ 3

高分子化合物前駆体、添加物、塩、非プロトン性溶媒の種類及び量として次表 1 にそれぞれ示したものをを用いた以外は実施例 1 と同様にして高分子電解質を得た。

[リチウムイオン輸率の測定]

上記実施例及び比較例により得られた高分子電解質を直径 13 mm の円形に打ち抜き、同径のリチウム金属電極で挟み、直流分極法によりリチウムイオン輸率を測定した。結果を表 1 に併せ示す。

(以下余白)

表 1

| 実施例 | 添加物とその濃度(mol/kg) | 高分子化合物前駆体 | 塩とその濃度(mol/kg) | 非プロトン性溶媒 | リチウムイオン輸率 |
|-----|------------------|-----------|----------------|--|-----------------------|
| 1 | 3Z-3 | 1 | B-1 1g | LiBF ₄ 1 | GBL 1.2g 0.84 |
| 2 | 3Z-13 | 0.03 | B-2 1g | LiPF ₆ 0.01 | — 0.75 |
| 3 | 4Z-3 | 0.05 | B-3 1g | LiClO ₄ 0.1 | — 0.84 |
| 4 | 5Z-1 | 0.01 | B-4 1g | LiAsF ₆ 10 | — 0.76 |
| 5 | 6Z-1 | 0.005 | B-5 1g | LiCF ₃ SO ₃ 5 | — 0.83 |
| 6 | 3Z-3 | 0.05 | B-6 1g | LiN(CF ₃ SO ₂) ₂ 0.05 | — 0.81 |
| 7 | 3Z-13 | 2 | B-7 1g | LiN(C ₂ F ₅ SO ₂) ₂ 2 | — 0.79 |
| 8 | 4Z-3 | 8 | B-8 1g | LiC(CF ₃ SO ₂) ₃ 8 | — 0.79 |
| 9 | 5Z-1 | 0.005 | B-9 1g | LiCl 0.5 | — 0.77 |
| 10 | 6Z-1 | 0.03 | B-10 1g | LiF 3 | EC 9.5g, DO 9.5g 0.82 |
| 11 | 3Z-3 | 0.3 | B-5 1g | LiBr 0.3 | EC 0.3g, SL 0.3g 0.80 |
| 12 | 3Z-13 | 6 | B-10 1g | LiI 6 | EC 1g, DME 2g 0.82 |
| 比較例 | | | | | |
| 1 | 4Z-3 | 0.001 | B-5 1g | LiN(CF ₃ SO ₂) ₂ 0.001 | — 0.61 |
| 2 | 5Z-1 | 15 | B-10 1g | LiCl 15 | — 測定不能 |
| 3 | 添加せず | | B-5 1g | LiBF ₄ 1 | — 0.12 |

※EC:エチレンカーボネート, GBL:γ-ブチロラクトン, DO:1, 3-ジオキソラン
DME:1,2-ジメトキシエタン, SL:スルホラン

※EC:エチレンカーボネート, GBL:γ-ブチロラクトン, DO:1, 3-ジオキソラン
DME:1,2-ジメトキシエタン, SL:スルホラン

(2) 非水電解質についての実施例・比較例

[非水電解質の製造]

・実施例 1

γ-ブチロラクトン 1.2g に上記式 3Z-3 で示される添加物 1mol/kg、LiBF₄ 1mol/kg を加え、グローブボックス中で 40 °C で溶解させることで、非水電解質を得た。

・実施例 2 ～ 12

添加物、塩、非プロトン性溶媒の種類及び量として表 2 にそれぞれ示したものをを用いた以外は実施例 1 と同様にして非水電解質を得た。

・比較例 1 ～ 3

添加物、塩、非プロトン性溶媒の種類及び量として表 2 にそれぞれ示したものをを用いた以外は実施例 1 と同様にして非水電解質を得た。

[リチウムイオン輸率の測定]

上記実施例及び比較例により得られた非水電解質を直径 13 mm のポリプロピレン製多孔性セパレータに浸し、十分含浸させた後、同径のリチウム金属電極で挟み、直流分極法によりリチウムイオン輸率を測定した。結果を次の表 2 に併せ示す。

(以下余白)

表 2

| 実施例 | 添加物とその濃度 (mol/kg) | 塩とその濃度 (mol/kg) | 非プロトン性溶媒 | リチウムイオン輸率 |
|-----|-------------------|-----------------|------------------|-----------|
| 1 | 3Z-3 | 1 | GBL | 0.77 |
| 2 | 3Z-13 | 0.03 | PC | 0.66 |
| 3 | 4Z-3 | 0.05 | PC:DEC=1:1 | 0.70 |
| 4 | 5Z-1 | 0.01 | PC:DME=1:2 | 0.67 |
| 5 | 6Z-1 | 0.005 | EC:GBL=3:7 | 0.76 |
| 6 | 3Z-3 | 0.05 | EC:EMC=2:1 | 0.73 |
| 7 | 3Z-13 | 2 | EC:DEC:DMC=1:1:1 | 0.71 |
| 8 | 4Z-3 | 8 | PC:DEC=1:1 | 0.73 |
| 9 | 5Z-1 | 0.005 | PC:DME=1:2 | 0.71 |
| 10 | 6Z-1 | 0.03 | EC:DO=1:1 | 0.74 |
| 11 | 3Z-3 | 0.3 | EC:SL=1:2 | 0.72 |
| 12 | 3Z-13 | 6 | EC:DME=1:2 | 0.74 |
| 比較例 | | | | |
| 1 | 4Z-3 | 0.001 | EC:GBL=3:7 | 0.50 |
| 2 | 5Z-1 | 15 | EC:EMC=2:1 | 測定不能 |
| 3 | 添加せず | 1 | EC:DEC:DMC=1:1:1 | 0.30 |

※EC:エチレンカーボネート, GBL:γ-ブチロラクトン, DO:1,3-ジオキソラン

DME:1,2-ジメトキシエタン, SL:スルホラン, PC:プロピレンカーボネート

DEC:ジエチルカーボネート, EMC:エチルメチルカーボネート, DMC:ジメチルカーボネート

産業上の利用可能性

本発明の高分子電解質及び非水電解質によれば、ルイス酸である三価のホウ素原子を複数個構造中に有する化合物を添加剤として用いることで、電解質塩の解離が促進され、その結果電荷キャリアイオンの輸率向上が可能となる。しかも単位重量あたりの添加効果が大いなので大幅な輸率向上が可能で、添加剤の有効濃度領域も広い。

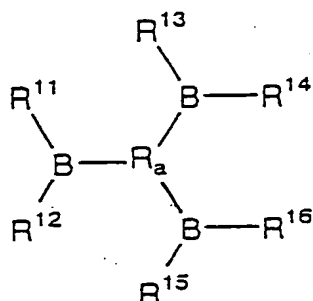
従って、これを用いることにより、従来のものよりさらに高電圧・高容量の電池を得ることが可能になる。電池の用途は限定されないが、ビデオ、カメラ、パソコン、携帯電話等の携帯用電気機器に特に好適に用いられる。

請求の範囲

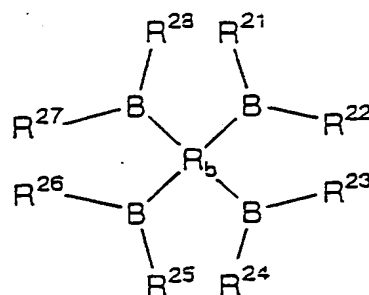
1. 電解質塩及び該電解質塩と複合体を形成する高分子化合物からなる高分子電解質であって、ホウ素原子を構造中に有する化合物が添加されてなることを特徴とする高分子電解質。

2. 前記ホウ素原子を構造中に有する化合物が、次の一般式(1)～(4)で表される化合物からなる群より選ばれた1種又は2種以上であることを特徴とする、請求項1に記載の高分子電解質。

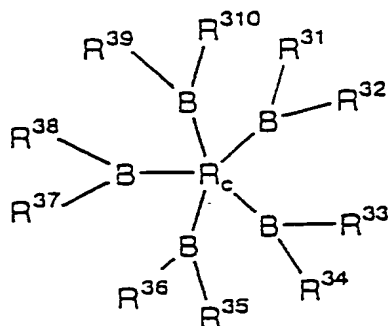
一般式(1)



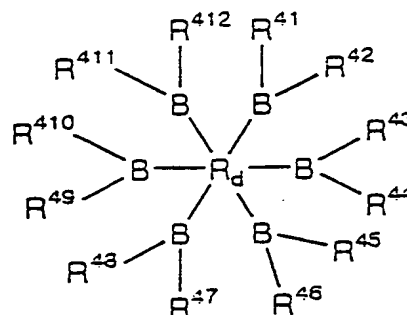
一般式(2)



一般式(3)



一般式(4)



式(1)中、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、式(2)中、 R^{21} 、 R^{22} 、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{25} 、 R^{26} 、 R^{27} 、 R^{28} 、式(3)中、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 、 R^{34} 、 R^{35} 、 R^{36} 、 R^{37} 、 R^{38} 、 R^{39} 、 R^{310} 、及び式(4)中、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{47} 、 R^{48} 、 R^{49} 、 R^{410} 、 R^{411} 、 R^{412} は、それぞれ互いに同一であっても異

なっているとしてもよく、各々水素原子、ハロゲン原子、又は1価の基を示し、あるいは、互いに結合して環を形成しているものとする。式(1)中、Raは少なくとも3つの同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な部位を含む基を示し、式(2)中、Rbは少なくとも4つの同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な部位を含む基を示し、式(3)中、Rcは少なくとも5つの同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な部位を含む基を示し、式(4)中、Rdは少なくとも6つの同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な部位を含む基を示す。

3. 前記 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、 R^{21} 、 R^{22} 、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{25} 、 R^{26} 、 R^{27} 、 R^{28} 、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 、 R^{34} 、 R^{35} 、 R^{36} 、 R^{37} 、 R^{38} 、 R^{39} 、 R^{310} 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{47} 、 R^{48} 、 R^{49} 、 R^{410} 、 R^{411} 、 R^{412} で示される基が、アルキル基、アリール基、及びこれらのフッ素置換誘導体からなる群より選ばれた1種又は2種以上であることを特徴とする、請求項2に記載の高分子電解質。

4. 前記高分子化合物が、ポリアルキレン、ポリエーテル、ポリエステル、ポリアミン、ポリイミド、ポリウレタン、ポリスルフィド、ポリフォスファゼン、ポリシロキサン、これらの誘導体、これらの共重合体、及びこれらの架橋体からなる群より選ばれた1種又は2種以上であることを特徴とする、請求項1～3のいずれか1項に記載の高分子電解質。

5. 前記高分子化合物が、ポリアルキレンオキシド、ポリフッ化ビニリデン、ポリヘキサフルオロプロピレン、ポリアクリロニトリル、ポリメタクリル酸メチル、これらの誘導体、これらの共重合体、及びこれらの架橋体からなる群より選ばれた1種又は2種以上であることを特徴とする、請求項1～3のいずれか1項に記載の高分子電解質。

6. 前記電解質塩が金属塩であることを特徴とする、請求項1～5のいずれか1項に記載の高分子電解質。

7. 前記金属塩がリチウム塩であることを特徴とする、請求項6に記載の高分子

電解質。

8. 前記リチウム塩が、 LiBF_4 、 LiPF_6 、 LiClO_4 、 LiAsF_6 、 LiCF_3SO_3 、 $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ 、 $\text{LiN}(\text{C}_2\text{F}_5\text{SO}_2)_2$ 、 $\text{LiC}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3$ 、 LiCl 、 LiF 、 LiBr 、 LiI 、およびこれらの誘導体等からなる群より選ばれた1種又は2種以上であることを特徴とする、請求項7に記載の高分子電解質。

9. 非水溶媒をさらに含有してなることを特徴とする、請求項1～8に記載の高分子電解質。

10. 前記非水溶媒が非プロトン性溶媒であることを特徴とする、請求項9に記載の高分子電解質。

11. 前記非プロトン性溶媒が、カーボネート類、ラクトン類、エーテル類、スルホラン類、およびジオキソラン類からなる群より選ばれた1種又は2種以上であることを特徴とする、請求項10に記載の高分子電解質。

12. 前記ホウ素原子を構造中に有する化合物と電解質塩とのモル比が、0.1 : 100～300 : 100であることを特徴とする、請求項1～11に記載の高分子電解質。

13. 請求項1～12のいずれか1項に記載の高分子電解質を用いてなる電気デバイス。

14. 正極と負極とが、請求項1～12のいずれか1項に記載の高分子電解質を介して接合されてなる電池。

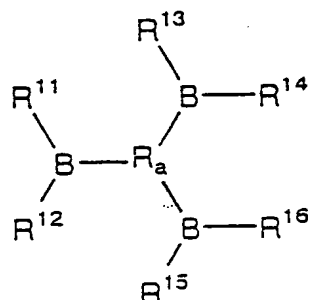
15. 前記正極がリチウムイオンを吸蔵及び放出することが可能な複合金属酸化物からなり、負極がリチウム金属、リチウム合金、もしくはリチウムイオンを可逆的に吸蔵及び放出することが可能な化合物からなることを特徴とする、請求項14に記載の電池。

16. 電解質塩及び該電解質塩を溶解させる非水溶媒からなる非水電解質であって、ホウ素原子を構造中に有する化合物が添加されてなることを特徴とする非水

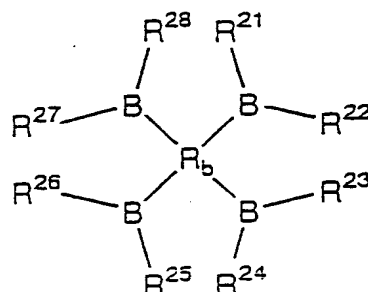
電解質。

17. 前記ホウ素原子を構造中に有する化合物が、次の一般式(1)～(4)で表される化合物からなる群より選ばれた1種又は2種以上であることを特徴とする、請求項16に記載の非水電解質。

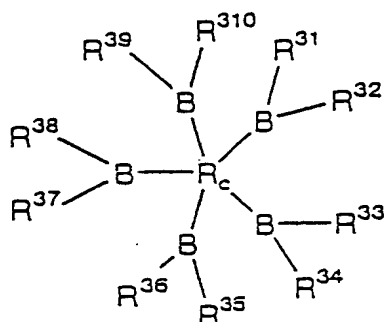
一般式(1)



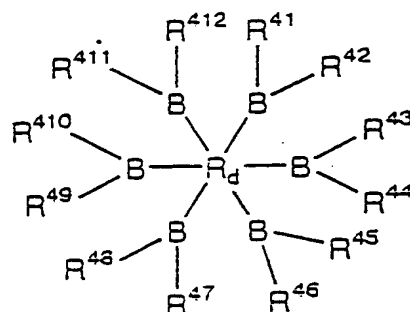
一般式(2)



一般式(3)



一般式(4)



式(1)中、 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、式(2)中、 R^{21} 、 R^{22} 、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{25} 、 R^{26} 、 R^{27} 、 R^{28} 、式(3)中、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 、 R^{34} 、 R^{35} 、 R^{36} 、 R^{37} 、 R^{38} 、 R^{39} 、 R^{40} 、及び式(4)中、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{47} 、 R^{48} 、 R^{49} 、 R^{50} 、 R^{51} 、 R^{52} は、それぞれ互いに同一であっても異なってもよく、各々水素原子、ハロゲン原子、又は1価の基を示し、あるいは、互いに結合して環を形成しているものとする。式(1)中、 R_a は少なくとも3つの同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な部位を含む基を示し、式(2)中、 R_b は少なくとも4つの同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な

部位を含む基を示し、式(3)中、Rcは少なくとも5つの同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な部位を含む基を示し、式(4)中、Rdは少なくとも6つの同種あるいは異種のホウ素原子と結合可能な部位を含む基を示す。

18. 前記 R^{11} 、 R^{12} 、 R^{13} 、 R^{14} 、 R^{15} 、 R^{16} 、 R^{21} 、 R^{22} 、 R^{23} 、 R^{24} 、 R^{25} 、 R^{26} 、 R^{27} 、 R^{28} 、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 、 R^{34} 、 R^{35} 、 R^{36} 、 R^{37} 、 R^{38} 、 R^{39} 、 R^{40} 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} 、 R^{45} 、 R^{46} 、 R^{47} 、 R^{48} 、 R^{49} 、 R^{410} 、 R^{411} 、 R^{412} が、アルキル基、アリール基、及びこれらのフッ素置換誘導体からなる群より選ばれた1種又は2種以上であることを特徴とする、請求項17に記載の非水電解質。

19. 前記電解質塩が金属塩であることを特徴とする、請求項16～18のいずれか1項に記載の非水電解質。

20. 前金属塩がリチウム塩であることを特徴とする、請求項19に記載の非水電解質。

21. 前記リチウム塩が、 $LiBF_4$ 、 $LiPF_6$ 、 $LiClO_4$ 、 $LiAsF_6$ 、 $LiCF_3SO_3$ 、 $LiN(CF_3SO_2)_2$ 、 $LiN(C_2F_5SO_2)_2$ 、 $LiC(CF_3SO_2)_3$ 、 $LiCl$ 、 LiF 、 $LiBr$ 、 LiI 、およびこれらの誘導体等からなる群より選ばれた1種又は2種以上であることを特徴とする、請求項20に記載の非水電解質。

22. 前記非水溶媒が非プロトン性溶媒であることを特徴とする、請求項16～21に記載の非水電解質。

23. 前記非プロトン性溶媒が、カーボネート類、ラクトン類、エーテル類、スルホラン類、およびジオキソラン類からなる群より選ばれた1種又は2種以上であることを特徴とする、請求項22に記載の非水電解質。

24. 前記ホウ素原子を構造中に有する化合物と電解質塩とのモル比が、0.1:100～300:100であることを特徴とする、請求項16～23のいずれか1項に記載の非水電解質。

25. 請求項16～24のいずれか1項に記載の非水電解質を用いてなる電気デバイス。

26. 正極と負極とが、請求項16～24のいずれか1項に記載の非水電解質及びセパレーターを介して接合されてなる電池。

27. 前記正極がリチウムイオンを吸蔵及び放出することが可能な複合金属酸化物からなり、負極がリチウム金属、リチウム合金、もしくはリチウムイオンを可逆的に吸蔵及び放出することが可能な化合物からなることを特徴とする、請求項26に記載の電池。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05812

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ H01M10/40

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ H01M10/40

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

| | | | |
|---------------------------|-----------|----------------------------|-----------|
| Jitsuyo Shinan Koho | 1926-1996 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2000 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2000 | Jitsuyo Shinan Toroku Koho | 1996-2000 |

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
dialogue file 352(WPI/J) MC=X16-A02A,X16-B01F1,X16-J?

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|---|-----------------------------|
| EX | EP, 986122, A (SONY Corp.), 15 March, 2000 (15.03.00), Claims 1-14; Par. Nos. [0025] to [0039] (& JP, 2000-82330, A, Claims 1 to 14; Par. Nos. 0023 to 0037, etc.) | 1,4-16,19-27 |
| EX | JP, 2000-173343, A (Japan Carlit Co., Ltd.), 23 June, 2000 (23.06.00), Claims 1 to 8; example; utility of the invention (Par. No. 0104), etc. (Family: none) | 1,4-7,12-16, 19,20,24-27 |
| EX | JP, 2000-90731, A (Fujikura Ltd.), 31 March, 2000 (31.03.00), Claims 1, 2; Par. Nos. 0009 to 0017, etc. (Family: none) | 1,4-7,9-16, 19,20,22-27 |
| X | JP, 11-134937, A (Osaka Prefecture), 21 May, 1999 (21.05.99), | 1,6,7,13-16,19 ,20,24-27 |
| A | Claims 1 to 13; Par. No. 0029, etc. (Family: none) | 2-5,8-12,17,18 ,21-23 |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
 "E" earlier document but published on or after the international filing date
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
13 November, 2000 (13.11.00)

Date of mailing of the international search report
21 November, 2000 (21.11.00)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05812

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------------------|
| X A | JP, 60-165050, A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 28 August, 1985 (28.08.85), Claim 1, etc. (Family: none) | 1, 13-16, 25-27 2-12, 17-24 |

| | | |
|--|--|---------------------------------|
| A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) | | |
| Int.Cl ⁷ . H01M10/40 | | |
| B. 調査を行った分野 | | |
| 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) | | |
| Int.Cl ⁷ . H01M10/40 | | |
| 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案 1926-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2000年 日本国登録実用新案公報 1994-2000年 日本国実用新案登録公報 1996-2000年 | | |
| 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) dialogue file 352(WPI/J) MC=X16-A02A, X16-B01F1, X16-J? | | |
| C. 関連すると認められる文献 | | |
| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
| E X | EP, 986122, A, (SONY Corp.), 15. Mar. 2000 (15. 03. 00) claims1-14, [0025]-[0039] (& JP, 2000-82330, A, 請求項1-14、段落0023-0037など) | 1, 4-16, 19-27 |
| E X | JP, 2000-173343, A, (日本カーリット株式会社), 23. 6月. 2000 (23. 06. 00) 請求項1-8、実施例、発明の用途(段落0104)など (ファミリーなし) | 1, 4-7, 12-16, 19, 20, 24-27 |
| <input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。 | | |
| * 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献 | | |
| 国際調査を完了した日 | 国際調査報告の発送日 | |
| 13. 11. 00 | 21.11.00 | |
| 国際調査機関の名称及びあて先 | 特許庁審査官 (権限のある職員) | 4 X 9 4 4 5 |
| 日本国特許庁 (ISA/J P) | 植 前 充 司 | 印 |
| 郵便番号100-8915 | 電話番号 03-3581-1101 | 内線 3477 |
| 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号 | | |

| C (続き) . 関連すると認められる文献 | | |
|-----------------------|---|---|
| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
| E X | JP, 2000-90731, A、(株式会社フジクラ)、31. 3月. 2000 (31. 03. 00) 請求項 1, 2、段落0009-0017など (ファミリーなし) | 1, 4-7, 9-16, 19, 20, 22-27 |
| X A | JP, 11-134937, A、(大阪府)、21. 5月. 1999 (21. 05. 99) 請求項 1 - 1 3、段落0029など (ファミリーなし) | 1, 6, 7, 13-16, 19, 20, 24-27 2-5, 8-12, 17, 18, 21-23 |
| X A | JP, 60-165050, A、(三洋電機株式会社)、28. 8月. 1985 (28. 08. 85) 特許請求の範囲第 1 項など (ファミリーなし) | 1, 13-16, 25-27 2-12, 17-24 |